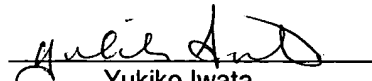


PATENT  
TS8067 (US)  
YI:EM

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as first class mail in an envelope addressed to Commissioner for Patents, P. O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450 on or before the date shown below.

  
Yukiko Iwata  
Date: April 20, 2004

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of	)	
	)	
SHYUNICHI KOIDE, YASUYUKI KOMATSU,	)	
and MASAHIKO SHIBUYA	)	
	)	
Serial No. 10/726,376	)	Group Art Unit: 1764
	)	
Filed December 3, 2003	)	
	)	
KEROSENE COMPOSITION	)	April 20, 2004
	)	

COMMISSIONER FOR PATENTS  
P. O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

**CLAIM TO PRIORITY**


Applicants reaffirm the claim for the benefit of filing date of the following foreign patent application referred to in Applicants' Declaration:

Japanese application Serial No. 2002-351205 filed December 3, 2002

A copy of the application certified by the Japanese Patent Office is enclosed.

Respectfully submitted,

SHYUNICHI KOIDE, YASUYUKI KOMATSU,  
and MASAHIKO SHIBUYA

By   
Attorney, Yukiko Iwata  
Registration No. 35,748  
(713) 241-5593

P.O. Box 2463  
Houston, Texas 77252-2463

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

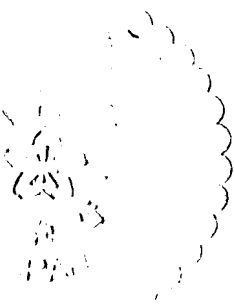
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年12月 3日  
Date of Application:

出願番号 特願2002-351205  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP2002-351205]

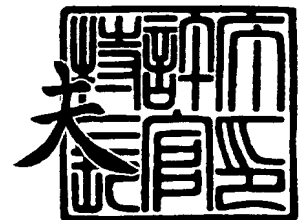
出願人 昭和シェル石油株式会社  
Applicant(s):



2003年10月 8日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井 康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 HP003276-3

【提出日】 平成14年12月 3日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C10L 1/00

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区台場 2 丁目 3 番 2 号 昭和シェル石油株式会社  
社内

    【氏名】 渋谷 昌彦

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区台場 2 丁目 3 番 2 号 昭和シェル石油株式会社  
社内

    【氏名】 小出 俊一

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都港区台場 2 丁目 3 番 2 号 昭和シェル石油株式会社  
社内

    【氏名】 小松 泰幸

【特許出願人】

    【識別番号】 000186913

    【氏名又は名称】 昭和シェル石油株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100094466

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 友松 英爾

    【電話番号】 03-3226-4701

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100116481

【弁理士】

【氏名又は名称】 岡本 利郎

【電話番号】 03-3226-4701

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007777

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0013119

【包括委任状番号】 0014972

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 灯油組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 炭素数 7 ～ 1 8 の *n*-パラフィンおよび／または炭素数 7 ～ 1 8 の *i s o*-パラフィン並びに炭素数 9 ～ 1 8 のシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体を 9 9 重量％以上含有してなる灯油組成物。

【請求項 2】 *n*-パラフィンおよび／または *i s o*-パラフィンに対するシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体の混合比が重量で 9 2 : 8 ～ 2 5 : 7 5 である請求項 1 記載の灯油組成物。

【請求項 3】 煙点が 3 0 mm 以上である請求項 1 または 2 記載の灯油組成物。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、暖房用燃料として取り扱い時および点火時、消化時に不快臭がなく、燃烧の排ガスがクリーンで、かつ、貯蔵安定性が高いなどの優れた性能を備えた灯油組成物に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

灯油は暖房用、厨房用として広く用いられている。従来の灯油は、暖房用として使用する場合、給油等で灯油を取り扱う際に油臭く、使用者に不快感を与えていた。また、ポータブルストーブ、ファンヒーター等の開放型ストーブに使用する際あるいは厨房用として石油コンロ等に使用する際の点火時や消火時に不完全燃烧し、その際発生する未燃烧の炭化水素により不快な臭気がするといった欠点を有していた。

一方、使用者が要望する石油ストーブに対する安全性や快適性（ $\text{NO}_x$ 、炭化水素化合物、 $\text{CO}$ 、 $\text{SO}_2$ などの発生が少なく、かつ不快臭を伴わない）なども年々レベルが高まっている。また、近年、夏越し灯油が出回り、それを使用することにより石油ストーブが故障するという問題も発生しており、灯油の貯蔵安定

性の改善についても要望されている。このような状況から、石油ストーブに使用される灯油は、使用者の要望に十分応え得るものでなければならない。

### 【0 0 0 3】

灯油一般に認められる取り扱い時の不快感、点火時、消火時の不快臭の欠点を解決する方法としては、灯油気化触媒を用いる方法（特許文献 1）、灯油に消臭剤を添加する方法（特許文献 2）、*n*-パラフィンおよび *i* s o -パラフィン類よりなる灯油（特許文献 3）などが提案されている。

しかしながら、灯油気化触媒を用いる方法では、触媒が経時的に劣化するため、長期間クリーンな燃焼を持続させることが困難であった。また、灯油に消臭剤を添加する方法は、匂いに対する個人の好みがあるため、あまり効果的ではなかった。また、*n*-パラフィンおよび *i* s o -パラフィン類よりなる灯油は、取り扱い時、点火時、消火時に不快な臭気がなく、排ガスもクリーンであるが、製造コストが大幅に上昇し、価格の高い灯油になってしまうという問題があった。また、炭素数 9、10 を主成分とする *n*-パラフィンおよび *i* s o -パラフィン類よりなる灯油は、従来の灯油より密度が低くなり、容積当たりの燃料消費量が大きくなるため、石油ストーブの表示燃料消費量に対する J I S 規格を満足しない恐れがあった。さらに、引火点が低くなり、安全性にも問題があった。

### 【0 0 0 4】

#### 【特許文献 1】

特公昭 5 9 - 1 6 8 1 4 号公報

#### 【特許文献 2】

特公昭 5 4 - 3 2 0 0 3 号公報

#### 【特許文献 3】

特開昭 6 3 - 1 5 0 3 8 0 号公報

### 【0 0 0 5】

#### 【発明が解決しようとする問題点】

本発明は、コスト、燃料消費量、引火点が一般灯油と同等であり、従来の方法では得られなかった、灯油自体の臭気が著しく少なく、取り扱い時に不快な油臭がなく、点火時または消火時の臭気がなく、燃焼性もよく、燃焼時の排ガスもク

リーンであり、さらに貯蔵安定性の優れた灯油組成物の提供を目的とする。

#### 【0006】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記従来技術の問題点を解決するために鋭意研究を行った結果、従来の原油蒸留により得られる灯油に代えて、特定の炭素数を有する *n*-パラフィンおよび／または *i*so-パラフィン並びにシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体を特定量含有する灯油ならば前記目的を達成できることを見出し本発明を完成するに至った。即ち、上記課題は、次の 1)～3) の発明によって解決される。

1) 炭素数 7～18 の *n*-パラフィンおよび／または炭素数 7～18 の *i*so-パラフィン並びに炭素数 9～18 のシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体を 99 重量%以上含有してなる灯油組成物。

2) *n*-パラフィンおよび／または *i*so-パラフィンに対するシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体の混合比が重量で 92:8～25:75 である 1) 記載の灯油組成物。

3) 煙点が 30 mm 以上である 1) または 2) 記載の灯油組成物。

#### 【0007】

以下、上記本発明について詳しく説明する。

本発明に用いられる炭素数 7～18 の *n*-パラフィンおよび *i*so-パラフィンは、天然ガス、石炭等から部分酸化、スチームリフォーミング等で合成ガスを得て、フィッシャートロプシュ反応により長鎖のアルキル炭化水素重合油にし、その後、水素化分解、蒸留を行うことにより得られる。また、製造コストが見合えば石油精製で得られる各留分から分離、合成等を行うことによっても得られる。

*n*-パラフィン、*i*so-パラフィンの炭素数が 7 未満であると、沸点、引火点が低すぎて好ましくなく、また炭素数が 18 を超えると、低温流動性が高くなりかつ沸点も高くなりすぎて燃焼性に悪影響を与えるため好ましくない。

本発明で用いられる *n*-パラフィン、*i*so-パラフィンとしては、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、*n*-ウンデカン、2-メチルヘ

プタン、2, 2-ジメチルヘキサン、2-メチルオクタン、2, 2-ジメチルヘプタン、2-メチルノナン、2, 2-ジメチルオクタン、2-メチルデカン、2, 2-ジメチルノナン等が挙げられる。

#### 【0008】

本発明に用いられる炭素数9～18のシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体は、石炭タールの蒸留による軽油、中油留分の水添、あるいは原油の蒸留分離、各留分の水添等により得られる。

シクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体の炭素数が9未満であると引火点が低すぎて好ましくなく、また炭素数が18を超えると、沸点が高すぎて燃焼性に悪影響を与えるために好ましくない。

本発明で用いられるシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体としては、*n*-ブチルシクロペンタン、*n*-ペンチルシクロペンタン、*n*-ヘキシルシクロペンタン、イソプロピルシクロヘキサン、*n*-ブチルシクロヘキサン、*n*-ペンチルシクロヘキサン、*n*-ヘキシルシクロヘキサン、シス-デカヒドロナフタレン、トランス-デカヒドロナフタレン、1-メチルー（トランス-デカヒドロナフタレン）、9-エチルー（シス-デカヒドロナフタレン）等が挙げられる。

#### 【0009】

本発明の灯油は前記 *n*-パラフィンおよび／または *i s o*-パラフィン並びにシクロパラフィンおよびその誘導体の含量が99重量%以上である必要がある。これらの含量が99重量%未満であると、芳香族成分、オレフィン成分、含酸素成分、窒素成分、硫黄成分等が混入し、灯油取り扱い時または点火時、消火時に臭気を感じられるようになり、貯蔵安定性が一般灯油と同程度になる。

また、*n*-パラフィンおよび／または *i s o*-パラフィンに対するシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体の混合比は、好ましくは重量比で92:8～25:75、より好ましくは、85:15～55:45とする。シクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体の含量が多くなると、燃焼性を示す煙点が30mm未満になるため好ましくなく、少なくなると、引火点がJIS規格を下回ると共に、ストーブの容積当りの燃料消費量（L/h）の表示より実際の燃料消費量が多くなり、JIS規格の+10%を超えてしまうため好ましくない。



## 【0010】

上記組成からなる本発明の灯油組成物は下記(1)～(4)の性状を有しており、特に煙点が高く燃焼性において優れている。煙点が高くなり燃焼性が向上すると、点火から完全燃焼に至るまでの時間が短くなり、定常燃焼時では完全燃焼が促進される。そのため、点火時の不快な臭気やすすが無くなり、点火時および定常燃焼時の排ガスもクリーンとなる。

(1) 蒸留 I B P (初留点) : 150℃以上、好ましくは155℃以上で、

95%留出温度は270℃以下である。

(2) 引火点: 40℃以上

(3) 硫黄分: 10ppb以下

(4) 煙点: 30mm以上(35mm以上、更には40mmのものも得られる)  
以上

## 【0011】

## 【実施例】

以下、実施例及び比較例により、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら限定されるものではない。

## 【0012】

## 実施例 1

天然ガスを部分酸化し、フィッシャーートロプシュ合成により重質パラフィン  
を合成し、得られた重質パラフィン油を水素化分解・蒸留によりナフサ、灯油、  
軽油留分を得る S M D S ( S h e l l M i d d l e D i s t i l l a t e  
S y n t h e s i s ) プロセスにより製造し、表1に示す組成の n-パラフィン  
／ i s o-パラフィン混合油を得た。

次いで、この混合油 92 重量部とデカリン (デカヒドロナフタレン) 8 重量部  
を混合し、 n-パラフィン／ i s o-パラフィン／デカリン混合灯油を得た。

【表 1】

化合物名	濃度 重量%	化合物名	濃度 重量%
n-ヘプタン	0.01	n-ドデカン	0.73
i s o-ヘプタン	0.07	i s o-ドデカン	0.73
n-オクタン	0.50	n-トリデカン	0.05
i s o-オクタン	5.66	i s o-トリデカン	0.05
n-ノナン	26.95	n-テトラデカン	0.04
i s o-ノナン	16.13	i s o-テトラデカン	0.01
n-デカン	20.96	n-ペンタデカン	0.02
i s o-デカン	15.48	i s o-ペンタデカン	0.01
n-ウンデカン	3.83	n-ヘキサデカン	0.02
i s o-ウンデカン	8.74	n-ヘプタデカン	0.01

なお、上記表中の i s o-パラフィン、異性体を構造別に定量することが難しいため、同じ炭素数の分岐状炭化水素を全て纏めた濃度で示してある。例えば、i s o-オクタンには、2-メチルヘプタン、2, 2-ジメチルヘキサンなどの異性体が全て含まれている。

## 【0013】

## 実施例 2

実施例 1 で得られた n-パラフィン / i s o-パラフィン混合油 70 重量部とデカリン 30 重量部を混合し、n-パラフィン / i s o-パラフィン / デカリン混合灯油を得た。

## 【0014】

## 実施例 3

実施例 1 で得られた n-パラフィン / i s o-パラフィン混合油 25 重量部とデカリン 75 重量部を混合し、n-パラフィン / i s o-パラフィン / デカリン混合灯油を得た。

## 【0015】

上記のようにして得られた実施例 1 ~ 3 の灯油組成物、SMD S プロセスより製造された表 1 に示す組成の灯油（比較例 1）、一般に販売されている J I S 1

号灯油（比較例 2）の性状を表 2 に示す。

【表 2】

性状		試験方法	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
比重 1 5 / 4℃		JISK2249	0. 751	0. 794	0. 882	0. 735	0. 800
引火点℃		JISK2265	42	45	51	41	49
硫黄分 (p p m)		JISK2545	1 以下	1 以下	1 以下	1 以下	42
煙点 (mm)		JISK2537	48	44	30	50 以上	24
流動点 (℃)		JISK2269	-30 以下	-30 以下	-30 以下	-30 以下	-30 以下
蒸留 ℃	初留点	JISK2254	156. 5	161. 0	171. 0	154. 5	153. 5
	9 5 %	JISK2254	199. 0	197. 0	192. 5	199. 5	265. 0

表 2 から分るように、本発明の灯油組成物の性状は、比較例 2 に比べて煙点が 3 0 mm 以上と高く、燃焼性に優れ、硫黄分も少ない。また、比較例 1 に比べて引火点が高く、十分 J I S 規格を満足する。

#### 【0 0 1 6】

実施例 1 ～ 3 および比較例 1 ～ 2 の灯油を用い、以下に示す試験を行った。

#### < ストープ燃焼試験 >

芯上下式ストーブおよび石油ファンヒーターを用いて、燃焼性能試験を実施した。芯上下式ストーブは J I S S 2 0 1 9 および J I S S 2 0 3 1 の試験法により、石油ファンヒーターは J I S S 2 0 3 6 および J I S S 2 0 3 1 の試験法に従い、最大燃焼時の燃料消費量、および排ガス中の C O / C O <sub>2</sub> を測定した。

結果を表 3 に示す。

【表 3】

燃焼性能	試験項目		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
	燃料消費量	実測 L/h 表示と実測との差%	0.294 +10.0	0.278 +4.2	0.246 -7.8	0.299 +12.0	0.251 -6.0
芯上下式ストーブ	排ガス中の CO/CO <sub>2</sub>		0.00004	0.00004	0.00006	0.00005	0.00037
	排ガス中の SO <sub>2</sub> 分 ppm		0.01 以下	0.01 以下	0.01 以下	0.01 以下	0.60
石油ファンヒーター	燃料消費量	実測 L/h 表示と実測との差%	0.367 +9.8	0.352 +3.6	0.315 -7.4	0.374 +12.0	0.348 +4.2
	排ガス中の CO/CO <sub>2</sub>		0.00030	0.00028	0.000028	0.00029	0.00032
	排ガス中の SO <sub>2</sub> 分 ppm		0.01 以下	0.01 以下	0.01 以下	0.01 以下	0.50

表 3 から分るように、本発明の灯油組成物は、比較例 2 の灯油に比べて排ガス中の CO/CO<sub>2</sub> が小さく、SO<sub>2</sub> 分も著しく少なく、排ガスがクリーンである。また、比較例 1 の灯油は、ストーブの容量当りの燃料消費量 (L/h) の表示と実測との差が J I S 規格の ± 10 % 以内を満足しないのに対し、本発明の灯油組成物は、この J I S 規格を満足する。

【0017】

## ＜臭気官能試験＞

芯上下式ストーブおよび石油ファンヒーターを用いて、取り扱い時、点火時、消火時の 20 名による官能試験を実施した。結果を表 4 に示す。

【表 4】

灯油自体の臭気	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
	比較例 2 に比べ少ない 変わらない 悪い	比較例 2 に比べ少ない 変わらない 悪い	比較例 2 に比べ少ない 変わらない 悪い	比較例 2 に比べ少ない 変わらない 悪い	比較例 2 に比べ少ない 変わらない 悪い
芯上下式 ストーブ	着火時	20 0 0	20 0 0	20 0 0	20 0 0
	消火時	18 2 0	16 4 0	18 2 0	18 2 0
石油ファン ヒーター	着火時	20 0 0	20 0 0	20 0 0	20 0 0
	消火時	19 1 0	17 3 0	19 1 0	19 1 0

表 4 から分るように、本発明の灯油組成物は、比較例 2 の灯油に比べて灯油自体の臭気が少なく、着火時、消火時の臭気も少ない。

【0018】

### ＜酸化安定性試験＞

試験装置はウェザーメーター（スガ試験機（株）製）内を 4 0℃とし、カーボンアークを照射し、一定時間後に劣化の指標としてセイボルトカラー、パーオキサイド量を測定した。結果を図 1 および図 2 に示す。

図 1 および図 2 から、本発明の灯油組成物は、比較例 2 の灯油に比べて著しく劣化し難く、貯蔵安定性に優れていることが分る。

### 【 0 0 1 9 】

#### 【発明の効果】

本発明によれば、コスト、燃料消費量、引火点が一般灯油と同等であり、従来の方法では得られなかった、灯油自体の臭気が著しく少なく、取り扱い時に不快な油臭がなく、点火時または消火時の臭気がなく、燃焼性もよく、燃焼時の排ガスもクリーンであり、さらに貯蔵安定性の優れた灯油組成物を提供できる。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図 1】

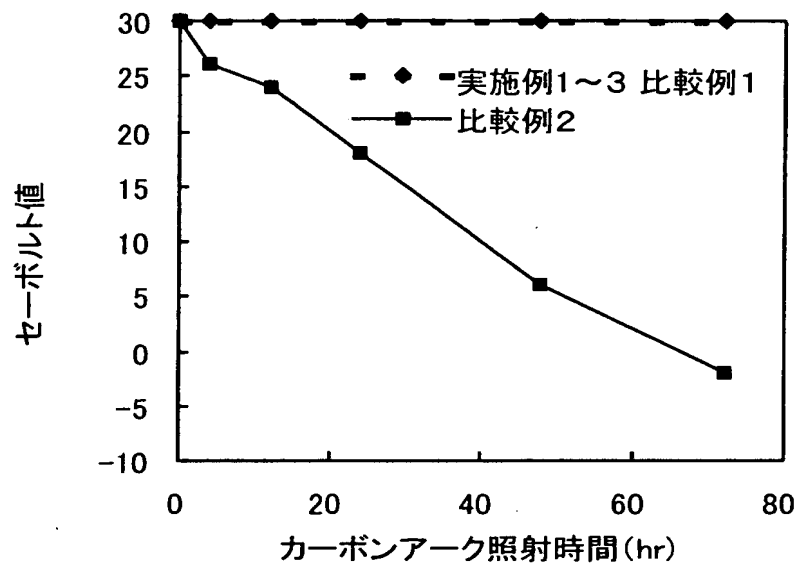
酸化安定化試験におけるセイボルト値の変化を示す図。

##### 【図 2】

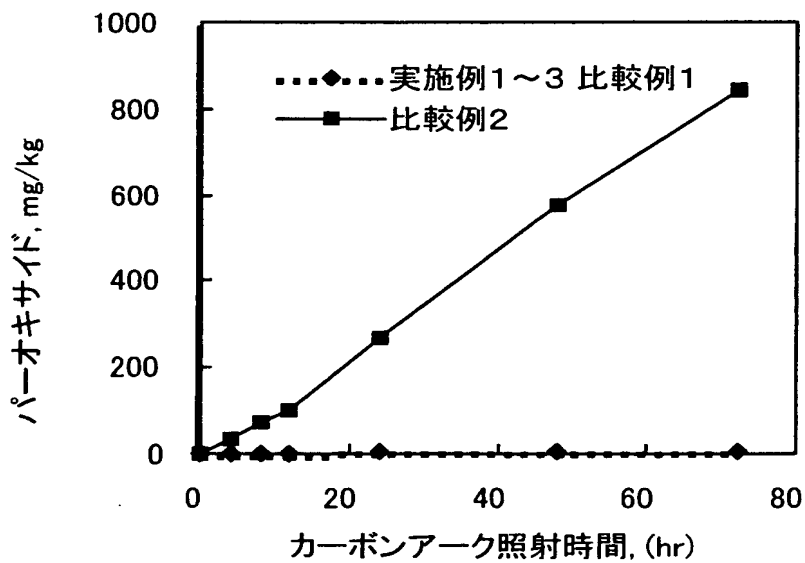
酸化安定化試験におけるパーオキサイド量の変化を示す図。

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明は、コスト、燃料消費量、引火点が一般灯油と同等であり、従来の方法では得られなかった、灯油自体の臭気が著しく少なく、取り扱い時に不快な油臭がなく、点火時または消火時の臭気がなく、燃焼性もよく、燃焼時の排ガスもクリーンであり、さらに貯蔵安定性の優れた灯油組成物の提供。

【解決手段】 炭素数 7～18 の n-パラフィンおよび／または炭素数 7～18 の i s o-パラフィン並びに炭素数 9～18 のシクロパラフィンおよびそのアルキル誘導体を 99 重量%以上含有してなる灯油組成物。

【選択図】 図 1



特願 2 0 0 2 - 3 5 1 2 0 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 8 6 9 1 3 ]

1. 変更年月日

1 9 9 6 年 1 2 月 1 3 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区台場二丁目 3 番 2 号

氏 名

昭和シェル石油株式会社